

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号  
特開2000-25157  
(P2000-25157A)

(43)公開日 平成12年1月25日(2000.1.25)

(51)Int.Cl.<sup>7</sup>

識別記号

F I

テーマコード(参考)

B 3 2 B 18/00

B 3 2 B 18/00

B

H 0 5 K 3/46

H 0 5 K 3/46

H

T

審査請求 未請求 請求項の数29 O L (全 11 頁)

(21)出願番号 特願平11-97155

(22)出願日 平成11年4月5日(1999.4.5)

(31)優先権主張番号 特願平10-118229

(32)優先日 平成10年4月28日(1998.4.28)

(33)優先権主張国 日本 (J P)

(71)出願人 000006231

株式会社村田製作所

京都府長岡京市天神二丁目26番10号

(72)発明者 亀田 裕和

京都府長岡京市天神二丁目26番10号 株式  
会社村田製作所内

(72)発明者 中尾 修也

京都府長岡京市天神二丁目26番10号 株式  
会社村田製作所内

(72)発明者 田中 謙次

京都府長岡京市天神二丁目26番10号 株式  
会社村田製作所内

(74)代理人 100085143

弁理士 小柴 雅昭 (外1名)

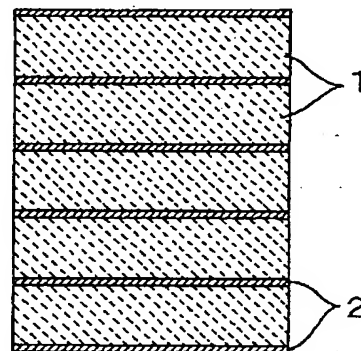
(54)【発明の名称】 複合積層体およびその製造方法

(57)【要約】

【課題】 焼成による収縮が抑制されながら製造することができ、焼成後の状態でそのまま使用に供され得る、複合積層体の製造方法を提供する。

【解決手段】 アノーサイト系結晶化ガラス粉末およびアルミナ粉末のような第1の粉体を含む、第1のシート層1と、これに接するように設けられ、かつ第1の粉体の一部であるアノーサイト系結晶化ガラスを焼結させ得る温度では焼結しないアルミナ粉末のような第2の粉体を含む、第2のシート層2とを備える、生の積層体を用意し、次いで、これを所定の温度で焼成し、それによって、第1の粉体を焼結させるとともに、アノーサイト系結晶化ガラスを第2のシート層2の全域に拡散あるいは流動させて第2の粉体を互いに固着させることによって、目的とする複合積層体4を得る。この製造方法は、キャビティを備える複合積層体を得ようとする場合、特に有利である。

4



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 第1の粉体の集合体を含む第1のシート層と、前記第1のシート層に接するように設けられ、かつ、第2の粉体の集合体を含む第2のシート層とを備える、複合積層体であって、

前記第1の粉体の少なくとも一部は、焼結状態にあり、かつ、前記第2の粉体は、未焼結状態にあるが、前記第1のシート層の材料の一部が前記第2のシート層に拡散あるいは流動することによって、互いに固着されていることを特徴とする、複合積層体。

【請求項2】 前記第1のシート層の材料の一部は、前記第2のシート層の全域に拡散あるいは流動しており、前記第2の粉体のすべてが前記第1のシート層の材料によって互いに固着されていることを特徴とする、請求項1に記載の複合積層体。

【請求項3】 前記第1の粉体の少なくとも一部は、前記第2の粉体の焼結温度より低い融点を有することを特徴とする、請求項1または2に記載の複合積層体。

【請求項4】 前記第1の粉体の集合体は、ガラス材料を含むことを特徴とする、請求項1ないし3のいずれかに記載の複合積層体。

【請求項5】 前記ガラス材料は、焼成により溶融してガラス化した材料を含むことを特徴とする、請求項4に記載の複合積層体。

【請求項6】 前記ガラス材料は、結晶化ガラス材料を含むことを特徴とする、請求項4または5に記載の複合積層体。

【請求項7】 前記第1の粉体の集合体は、さらにセラミック材料を含むことを特徴とする、請求項4ないし6のいずれかに記載の複合積層体。

【請求項8】 前記第1の粉体の集合体は、アノーサイト系結晶化ガラス、ホウケイ酸ガラスおよびコージエライト系結晶化ガラスのうちの少なくとも1種およびアルミナの混合材料を含むことを特徴とする、請求項7に記載の複合積層体。

【請求項9】 前記第2の粉体の集合体は、セラミック材料を含むことを特徴とする、請求項1ないし8のいずれかに記載の複合積層体。

【請求項10】 複数の前記第1のシート層を備え、複数の前記第1のシート層は、前記第2のシート層を介して積層されていることを特徴とする、請求項1ないし9のいずれかに記載の複合積層体。

【請求項11】 前記第2のシート層の各側に位置される前記第1のシート層の各厚みは、互いに実質的に同じであることを特徴とする、請求項10に記載の複合積層体。

【請求項12】 複数の前記第2のシート層を備え、複数の前記第2のシート層は、前記第1のシート層を介して積層されていることを特徴とする、請求項1ないし11のいずれかに記載の複合積層体。

【請求項13】 表面および／または内部に形成される導電膜をさらに備え、前記第1のシート層、前記第2のシート層および前記導電膜をもって回路基板を構成することを特徴とする、請求項1ないし12のいずれかに記載の複合積層体。

【請求項14】 前記第2のシート層は前記第1のシート層より薄いことを特徴とする、請求項1ないし13のいずれかに記載の複合積層体。

【請求項15】 その少なくとも一方の主面に沿って開口を位置させているキャビティをさらに備えることを特徴とする、請求項1ないし14のいずれかに記載の複合積層体。

【請求項16】 第1の粉体を含む生の状態にある第1のシート層と、前記第1のシート層に接するように設けられ、かつ、前記第1の粉体の少なくとも一部を焼結させ得る温度では焼結しない第2の粉体を含む、生の状態にある第2のシート層とを備える、生の積層体を用意する第1のステップと、

前記第1の粉体の少なくとも一部を焼結させるとともに、前記第1のシート層の材料の一部を前記第2のシート層に拡散あるいは流動させることによって、前記第2の粉体を、焼結させずに、互いに固着させるように、前記生の積層体を所定の温度で焼成する第2のステップとを備えることを特徴とする、複合積層体の製造方法。

【請求項17】 前記生の積層体は、前記第2のシート層を介して積層される複数の前記第1のシート層を備え、かつ、前記第2のシート層の各側に位置される前記第1のシート層の各厚みは、互いに実質的に同じであることを特徴とする、請求項16に記載の複合積層体の製造方法。

【請求項18】 前記第1のステップにおいて、前記第1のシート層は、前記第1の粉体を含む第1のグリーンシート状態で用意されることを特徴とする、請求項16または17に記載の複合積層体の製造方法。

【請求項19】 前記第1のステップにおいて、前記第2のシート層は、前記第2の粉体を含む第2のグリーンシート状態で用意され、前記第1のステップは、前記第2のグリーンシートを前記第1のグリーンシートに接するように積層するステップを備えることを特徴とする、請求項18に記載の複合積層体の製造方法。

【請求項20】 前記第1のステップにおいて、前記第1のグリーンシート上で前記第2のシート層が成形されることによって得られた複合シートが用意され、前記生の積層体は、その少なくとも一部において前記複合シートを含むことを特徴とする、請求項18に記載の複合積層体の製造方法。

【請求項21】 前記第1のステップにおいて、前記第1のシート層は、その少なくとも一部において複数の前記第1のグリーンシートを互いに接した状態で積層して得られた部分を含むことを特徴とする、請求項18ない

し20のいずれかに記載の複合積層体の製造方法。

【請求項22】 前記第2のステップにおいて、前記第1のシート層の材料の一部は、前記第2のシート層の全域に拡散あるいは流動し、前記第2の粉体のすべてを互いに固着させることを特徴とする、請求項16ないし21のいずれかに記載の複合積層体の製造方法。

【請求項23】 前記第1のステップは、前記生の積層体の表面および／または内部に導電膜を形成するステップを備えることを特徴とする、請求項16ないし22のいずれかに記載の複合積層体の製造方法。

【請求項24】 前記導電膜は導電性金属粉末を含み、前記第2のステップにおいて、前記導電性金属粉末が焼結されることを特徴とする、請求項23に記載の複合積層体の製造方法。

【請求項25】 前記生の積層体において、前記第2のシート層は前記第1のシート層より薄いことを特徴とする、請求項16ないし24のいずれかに記載の複合積層体の製造方法。

【請求項26】 前記第1のステップは、前記生の積層体の少なくとも一方の主面に沿って開口を位置させるようにキャビティを形成するステップを備えることを特徴とする、請求項16ないし25のいずれかに記載の複合積層体の製造方法。

【請求項27】 前記第1のステップは、前記生の積層体を得るため、複数のグリーンシートを積層するステップを備え、かつ、前記キャビティを形成するステップは、複数の前記グリーンシートのうちの外側に位置する特定のものに貫通孔を設けるステップを備えることを特徴とする、請求項26に記載の複合積層体の製造方法。

【請求項28】 前記貫通孔を設けるステップは、複数の前記グリーンシートを積層するステップの前に実施されることを特徴とする、請求項27に記載の複合積層体の製造方法。

【請求項29】 前記積層するステップは、積層されるべき複数の前記グリーンシートのうちの前記貫通孔が設けられるべきもののみを予め積層して予備積層体を得る予備積層ステップを含み、前記貫通孔を設けるステップは、前記予備積層体に貫通孔を設けるステップを含むことを特徴とする、請求項27に記載の複合積層体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 この発明は、複合積層体およびその製造方法に関するもので、特に、その一部の層が焼結状態にあり、かつこの焼結状態にある層の焼成による収縮が抑制された状態で得ることができる、複合積層体およびその製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 近年、チップ部品等の小型化および軽量化が進んでおり、これを実装する回路基板についても小

型化および軽量化が望まれている。このような要望に 대응するため、たとえばガラスセラミック多層回路基板が有効である。なぜなら、ガラスセラミック多層回路基板によれば、高密度配線および薄層化が可能であるからである。しかし、このようなガラスセラミック多層回路基板は、焼成工程を経て製造されるものであるが、一般に焼結時に収縮を伴うため、たとえば±0.5%程度の寸法のばらつきが生じているのが現状である。特に、適宜の電子部品を収容するためのキャビティを有するガラスセラミック多層基板の場合に、寸法のばらつきがより顕著になる。

【0003】そこで、寸法精度の高いガラスセラミック多層回路基板の製造方法として、たとえば特開平5-102666号公報または特開平7-330445号公報に記載されるように、さらにキャビティを有するガラスセラミック多層回路基板の製造方法として、たとえば特開平6-329476号公報に記載されるように、ガラスセラミック成形体の片面または両面にガラスセラミック成形体の焼結温度では焼結しないグリーンシートを積層した状態とし、この状態で焼成した後、グリーンシートによってもたらされた粉体層を除去する方法が提案されている。

【0004】しかしながら、上述したガラスセラミック多層回路基板の製造方法によれば、焼成後において、グリーンシートによる粉体層を除去しなければならないため、このような除去のための煩雑な工程が必要になるばかりでなく、焼成前のガラスセラミック成形体の表面に予め導電膜を形成しておき、これをガラスセラミック成形体の焼成工程において同時に焼成することが不可能である。また、グリーンシートによる粉体層を除去した後のガラスセラミック多層回路基板の表面粗さが大きくなる等の問題も生じる。

【0005】また、特開平9-266363号公報では、ガラスセラミック層とアルミナ層とを積層した状態で焼成を行ない、ガラスセラミック層のみを焼結させ、アルミナ層を未焼結の状態としながら、ガラスセラミック層に含まれるガラスをアルミナ層の内部に浸入させることにより、アルミナ層を固着させることが記載されている。この場合において、ガラスセラミック層から浸入するガラスは、アルミナ層の全域には行き届くことがなく、アルミナ層の未固着部分を除去するとともに、表面を研磨することが行なわれ、これら除去および研磨の後に、回路パターンのための導電膜の形成工程が実施される。

【0006】したがって、この従来技術によれば、除去および研磨工程によって表面粗さを小さくすることが可能であるが、前述した従来技術と同様、焼成工程の後に除去工程が別途必要であるとともに、回路基板の表面に形成されるべき導電膜を、ガラスセラミック層との同時焼成によって得ることができない。

【0007】また、特開平5-136572号公報では、前述した従来技術と同様、ガラスセラミック成形体の片面または両面に、このガラスセラミックの焼結温度では焼結しないグリーンシートを積層し、ガラスセラミック成形体のみを焼結させることが記載されている。ここでは、焼結しなかったグリーンシートによって与えられた粉体層に樹脂を充填することが行なわれる。

【0008】したがって、この従来技術によれば、未焼結の粉体層を除去する工程が不要であるが、未焼結の粉体層に樹脂を充填させるという工程が別途必要である。 10

【0009】

【発明が解決しようとする課題】そこで、この発明の目的は、焼成工程の後において、除去工程や樹脂充填工程などの後工程を特に必要とすることなく、使用に供せられ得る状態とすることができる複合積層体およびその製造方法を提供しようとするところである。

【0010】

【課題を解決するための手段】この発明は、まず、第1の粉体の集合体を含む第1のシート層と、第1のシート層に接するように設けられ、かつ、第2の粉体の集合体 20 を含む第2のシート層とを備える、複合積層体に向けられ、上述した技術的課題を解決するため、第1の粉体の少なくとも一部は、焼結状態にあり、他方、第2の粉体は、未焼結状態にあるが、第1のシート層の材料の一部が第2のシート層に拡散あるいは流動することによって、互いに固着されていることを特徴としている。

【0011】この発明に係る複合積層体において、好ましくは、第1のシート層の材料の一部は、第2のシート層の全域に拡散あるいは流動しており、第2の粉体のすべてが第1のシート層の材料によって互いに固着される。 30

【0012】また、この発明に係る複合積層体において、好ましくは、第1の粉体の少なくとも一部は、第2の粉体の焼結温度より低い融点を有する。

【0013】また、この発明に係る複合積層体において、好ましくは、第1の粉体の集合体は、ガラス材料を含む。この場合、ガラス材料は、焼成により溶融してガラス化した材料であってもよい。また、ガラス材料は、より好ましくは、結晶化ガラス材料である。また、第1の粉体の集合体は、ガラス材料とセラミック材料との混合状態となってもよい。この場合、第1の粉体の集合体は、アノーサイト系結晶化ガラス、ホウケイ酸ガラスおよびコージエライト系結晶化ガラスのうちの少なくとも1種とアルミナとの混合状態であることが好ましく、より好ましくは、ガラス材料として、アノーサイト系結晶化ガラスを含む。

【0014】他方、この発明に係る複合積層体において、第2の粉体の集合体は、好ましくは、セラミック材料を含む。

【0015】また、この発明に係る複合積層体は、複数 50

の第1および/または第2のシート層を備えていてもよい。この場合、複数の第1のシート層が、第2のシート層を介して積層されていたり、複数の第2のシート層が、第1のシート層を介して積層されていたりする。前者のように、複数の第1のシート層が、第2のシート層を介して積層されている場合、第2のシート層の各側に位置される第1のシート層の各厚みは、互いに実質的に同じであることが好ましい。

【0016】また、この発明に係る複合積層体は、表面および/または内部に形成される導電膜をさらに備えていることが好ましい。この場合、この発明に係る複合積層体は、第1のシート層、第2のシート層および導電膜をもって回路基板を構成する。

【0017】また、この発明に係る複合積層体において、第2のシート層は第1のシート層より薄いことが好ましい。

【0018】また、この発明は、その少なくとも一方の主面に沿って開口を位置させているキャビティをさらに備える、複合積層体に有利に適用される。

【0019】この発明は、また、上述のような複合積層体を製造する方法にも向けられる。この製造方法は、第1の粉体を含む生の状態にある第1のシート層と、第1のシート層に接するように設けられ、かつ、第1の粉体の少なくとも一部を焼結させ得る温度では焼結しない第2の粉体を含む、生の状態にある第2のシート層とを備える、生の積層体を用意する第1のステップと、第1の粉体の少なくとも一部を焼結させるとともに、第1のシート層の材料の一部を第2のシート層に拡散あるいは流動させることによって、第2の粉体を、焼結させずに、 40 互いに固着させるように、生の積層体を所定の温度で焼成する第2のステップとを備えることを特徴としている。

【0020】上述した第1のステップにおいて用意される生の積層体が、第2のシート層を介して積層される複数の第1のシート層を備えるとき、第2のシート層の各側に位置される第1のシート層の各厚みは、互いに実質的に同じであることが好ましい。

【0021】また、上述した第1のステップにおいて、第1のシート層は、典型的には、第1の粉体を含む第1のグリーンシート状態で用意される。

【0022】この場合であって、第2のシート層も、第2の粉体を含む第2のグリーンシートの状態で用意される場合には、第1のステップは、第2のグリーンシートを第1のグリーンシートに接するように積層するステップを備えることになる。

【0023】他方、第1のステップにおいて、第1のグリーンシート上で第2のシート層が成形されることによって得られた複合シートが用意され、この複合シートが、生の積層体を得るために、生の積層体の少なくとも一部において用いられてもよい。

【0024】また、第1のステップにおいて、第1のシート層は、所望の厚みを得るため、その少なくとも一部において複数の第1のグリーンシートを互いに接した状態で積層して得られた部分を含んでいてもよい。

【0025】また、上述した第2のステップにおいて、好ましくは、第1のシート層の材料の一部は、第2のシート層の全域に拡散あるいは流動し、第2の粉体のすべてを互いに固着させることが行なわれる。

【0026】また、この発明に係る複合積層体の製造方法において、好ましくは、第1のステップは、生の積層体の表面および／または内部に導電膜を形成するステップを備える。この場合において、導電膜が導電性金属粉末を含むとき、第2のステップにおいて、この導電性金属粉末が第1の粉体と同時に焼結されるようにすることが好ましい。

【0027】また、上述した第1のステップで用意される生の積層体において、第2のシート層は第1のシート層より薄いことが好ましい。

【0028】また、キャビティを有する複合積層体を得るため、上述した第1のステップは、生の積層体の少なくとも一方の主面に沿って開口を位置させるようにキャビティを形成するステップを備えていてもよい。

【0029】第1のステップが、生の積層体を得るため、複数のグリーンシートを積層するステップを備えている場合には、複数のグリーンシートのうちの外側に位置する特定のものに貫通孔を設けることによって、上述のようなキャビティを形成するようにすることが好ましい。

【0030】上述のようにグリーンシートに貫通孔を設ける場合、複数のグリーンシートを積層するステップの前に、貫通孔を設けることが好ましい。あるいは、積層されるべき複数のグリーンシートのうちの貫通孔が設けられるべきもののみを予め積層して予備積層体を得た後、この予備積層体に貫通孔を設けるようにしてもよい。

【0031】

【発明の実施の形態】この発明に係る複合積層体の積層構造に関して、種々の実施形態があるが、以下に、図1ないし図4を参照して、4つの典型的な実施形態について説明する。なお、図1ないし図4に示した各実施形態は、第1の粉体の集合体を含む第1のシート層1と、第2の粉体の集合体を含む第2のシート層2とを共通して備え、また、図2ないし図4に示した各実施形態は、さらに導電膜3を共通して備えている。したがって、図1ないし図4において、これら共通する要素には同様の参照符号を付すとともに、これら共通する要素については、一括して説明することにする。

【0032】図1に示した第1の実施形態による複合積層体4は、複数積層された第1のシート層1を備えるとともに、第1のシート層1に接するように、第1のシ

ト層1の各々の両面、すなわち複合積層体4の表面および内部に複数積層されて形成された、第2のシート層2を備えている。

【0033】図2に示した第2の実施形態による複合積層体5は、第1のシート層1を備えるとともに、第1のシート層1に接するように、第1のシート層1の両面に形成された第2のシート層2を備える。また、各第2のシート層2の表面には、導電膜3が形成されている。導電膜3は、たとえば、導電性金属粉末を含むペーストを印刷することにより形成されるもので、そこには、必要に応じて、所望のパターニングが施されている。

【0034】図3に示した第3の実施形態による複合積層体6は、複数積層された第1のシート層1を備えるとともに、第1のシート層1に接するように、第1のシート層1の界面に沿って延びる、すなわち複合積層体6の内部に形成されている、第2のシート層2を備えている。また、複合積層体6の表面には、導電膜3が所望のパターンをもって形成されている。

【0035】図4に示した第4の実施形態による複合積層体7は、複数積層された第1のシート層1を備えるとともに、第1のシート層1に接するように、複合積層体7の表面および内部に複数積層されて形成された第2のシート層2を備えている。また、複合積層体7の表面および内部には、導電膜3が所望のパターンをもって形成されている。より詳細には、複合積層体7の表面においては、導電膜3は第2のシート層2上に形成され、複合積層体7の内部においては、導電膜3は第2のシート層2に挟まれた状態で形成されている。

【0036】上述した各実施形態において、第2のシート層2は第1のシート層1より薄くされている。

【0037】また、上述した実施形態のうち、導電膜3を形成する図2ないし図4にそれぞれ示した複合積層体5、6および7は、そのまま、回路基板として用いるのに適している。

【0038】図1ないし図4にそれぞれ示した第1のシート層1は、第1の粉体の集合体を含んでいる。また、第2のシート層2は、第1のシート層1に接するように設けられ、かつ、第2の粉体の集合体を含んでいる。これら第1および第2の粉体のうち、第1の粉体の少なくとも一部は、焼結状態にあり、また、第1のシート層1の材料の一部が第2のシート層2に拡散あるいは流動することによって、第2の粉体は、未焼結状態にあるが、互いに固着されている。

【0039】このような第1および第2のシート層1および2を備える複合積層体4〜7を得るため、まず、第1の粉体を含む生の状態にある第1のシート層1と、第1のシート層1に接するように設けられ、かつ、第1の粉体の少なくとも一部を焼結させ得る温度では焼結しない第2の粉体を含む、生の状態にある第2のシート層2とを備える、生の積層体が用意される。そして、この生

の積層体を所定の温度で焼成することによって、第1の粉体の少なくとも一部を焼結させるとともに、第1のシート層1の材料の一部を第2のシート層2に拡散あるいは流動させることによって、第2の粉体を、焼結させずに、互いに固着させることが行なわれる。このようにして得られた複合積層体は、そのままの状態たとえば回路基板または回路基板のための基材として使用に供されることができる。

【0040】また、図2ないし図4にそれぞれ示した複合積層体5〜7のように、導電膜3を備えるものにおいて、生の積層体を用意した段階において、このような導電膜3が生積層体の表面および／または内部に形成した状態とされる。そして、導電膜3が導電性金属粉末を含むペースト等をもって形成される場合には、生の積層体の焼成工程において、この導電性金属粉末をも焼結させるようにする。

【0041】得られた複合積層体4〜7において、第1のシート層1の材料の一部は、第2のシート層2の全域に拡散あるいは流動しており、第2の粉体のすべてが第1のシート層1の材料によって互いに固着されていることが好ましい。このような状態をより確実に得るためには、前述したように、第2のシート層2は第1のシート層1より薄い方が好ましい。

【0042】また、前述したように、第1の粉体の少なくとも一部のみを焼結状態とし、第2の粉体については、第1のシート層1の材料の一部を第2のシート層2に拡散あるいは流動させることによって、互いに固着されるようにすることをより容易に達成するためには、第1の粉体の少なくとも一部は、第2の粉体の焼結温度より低い融点を有していることが好ましい。

【0043】第1のシート層1のための第1の粉体としては、たとえば、ガラス材料を含むものが有利に用いられる。この場合、ガラス材料は、焼成により溶融してガラス化した材料を含んでいてもよい。また、ガラス材料としては、結晶化ガラス材料がより有利に用いられる。また、第1の粉体は、ガラス材料からなる粉体とセラミック材料からなる粉体とを含んでいてもよい。

【0044】より特定の好ましい実施形態では、焼成前の第1のシート層1に含まれる第1の粉体としては、アノーサイト系結晶化ガラス粉末とアルミナ粉末とが用いられ、焼成後の第1のシート層1に含まれる第1の粉体の集合体は、アノーサイト系結晶化ガラスとアルミナとの混合材料を含むようにされる。

【0045】なお、上述のガラス材料としてのアノーサイト系結晶化ガラスは、その少なくとも一部がホウケイ酸ガラスまたはソーダライト系結晶化ガラス等の他のガラス材料に置き換えられてもよい。しかしながら、特に、アノーサイト系結晶化ガラスは、焼成中に溶融して、第2のシート層2へとより良好に拡散あるいは流動し得る点で好ましい。

【0046】また、生の第1のシート層1のための粉体の分散媒としては、水、トルエン、キシレン等を用いることができる。また、分散媒に加えて、結合剤を適宜添加してもよく、結合剤としては、ブチラル樹脂、アクリル樹脂、ウレタン樹脂、酢酸ビニル樹脂、ポリビニルアルコール等を用いることができる。さらに、必要に応じて、可塑剤、分散剤、消泡剤等を適宜添加することが好ましい。

【0047】より具体的な実施例では、粒径約5 $\mu$ mのアノーサイト系結晶化ガラス粉末と粒径約0.5 $\mu$ mのアルミナ粉末とを90:10の重量割合で混合し、これに分散媒としての水、および結合剤としてのウレタン樹脂をさらに混合して、スラリー化する。得られたスラリーから気泡を除去した後、ドクターブレード法によりシート成形し、乾燥させることにより、生の第1のシート層1を得ることができる。なお、第1のシート層1の形成方法としては、上述したドクターブレード法に代えて、押出成形法、ロール成形法、粉末プレス成形法等を用いることもできる。

【0048】また、たとえば、図1および図2にそれぞれ示した複合積層体4および5のための第1のシート層1にあっては、生の状態で、650 $\mu$ mの厚みとされ、図3および図4にそれぞれ示した複合積層体6および7のための第1のシート層1にあっては、生の状態で250 $\mu$ mの厚みとされる。

【0049】このような第1のシート層1の厚みに関して、図1、図3および図4にそれぞれ示した複合積層体4、6および7において見られるように、複数の第1のシート層1が第2のシート層2を介して積層されている場合、第2のシート層2の各側に位置される第1のシート層1の各厚みは、互いに実質的に同じであることが好ましい。このような関係をもって第1のシート層1の各厚みが設定されると、焼成ステップにおいて、第1のシート層1の各々の収縮量を互いに実質的に等しくすることができ、そのため、焼結後の複合積層体4、6および7において反りが生じることを有利に抑制することができる。

【0050】前述したアノーサイト系結晶化ガラスとアルミナとの混合比率に関して、アルミナを10重量%未満にまで減らしても、あるいは、10重量%を超え50重量%程度にまで増やしてもよい。

【0051】また、生の積層体を得るため、通常、生の第1のシート層1となるべきグリーンシートがまず用意され、このグリーンシートに接するように第2のシート層2が形成される。

【0052】第2のシート層2のための第2の粉末としては、セラミック粉末が有利に用いられる。より具体的な実施例では、アルミナ粉末が有利に用いられる。このアルミナ粉末を用いて、固形分濃度10〜50重量%のアルミナスラリーを作製し、この中に、上述のように作



製された生の第1のシート層1となるべきグリーンシートをディップし、乾燥することにより、このグリーンシートの片面または両面に、第2のシート層2を形成することができる。第2のシート層2の、この生の状態での厚みは、たとえば、5〜50 $\mu\text{m}$ とされる。

【0053】なお、第2のシート層2に含まれる第2の粉体としては、上述したアルミナ粉末のほか、たとえば、 $\text{MgO}$ 、 $\text{ZrO}_2$ 、 $\text{SiO}_2$ 、 $\text{TiO}_2$ 、 $\text{BaTiO}_3$ 、 $\text{SrTiO}_3$ 、 $\text{MgTiO}_3$ 、 $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$ 、 $\text{B}_4\text{C}$ 、 $\text{SiC}$ 、 $\text{WC}$ 等の粉末であってもよく、好ましくは、第1の粉体との間での濡れ性の良好な材料が選ばれる。

【0054】また、生の積層体を得るため、第1のシート層1となるべきグリーンシートに接するように第2のシート層2を形成する方法としては、上述したディップ法に代えて、たとえば、スプレー法、ロール塗布法、薄膜形成法、シート転写法（ホットスタンプ法）、シート圧着法を用いてもよい。

【0055】導電膜3は、たとえばAgペーストを用いてスクリーン印刷により形成される。なお、Agペーストに代えて、Ag-Pdペースト、Ag-Ptペースト、Cuペースト、Niペースト等を用いてもよい。

【0056】このように、生の状態にある第1および第2のシート層1および2、ならびに、必要に応じて導電膜3を形成し、かつ所望の態様で積層することによって、複合積層体4〜7の各々のための生の積層体が得られる。これら生の積層体は、たとえば、プレス機で100 $\text{kg}/\text{cm}^2$ の圧力を付与することによって積層体を構成する各要素が互いに密着され、かつ各要素自身が緻密な状態とされる。次いで、これら生の積層体は、たとえば、空气中、700〜1000 $^{\circ}\text{C}$ 、たとえば850 $^{\circ}\text{C}$ の温度で2時間焼成される。

【0057】この焼成ステップにおいて、第1のシート層1に含まれる第1の粉体の少なくとも一部は焼結するが、第2のシート層2に含まれる第2の粉体は焼結せず、そのため、第2のシート層2は、第1のシート層1の面方向での収縮を抑制する。実験によれば、複合積層体4〜7の各々について、焼成による収縮率は0.5%未満に抑制することができた。

【0058】また、この焼成ステップにおいて、第1のシート層1の材料の一部、たとえば、アノサイト系結晶化ガラスの一部は、第2のシート層2に拡散あるいは流動し、それによって、第2の粉体が互いに固着される。特に、第1のシート層1のための第1の粉体として、このようなアノサイト系結晶化ガラス粉末を用いると、前述したように、第2のシート層2の全域に拡散あるいは流動することが容易であり、そのため、第2の粉体のすべてをこれによって良好に固着させることができる。

【0059】このようにして得られた複合積層体4〜7

において、その表面粗さRaは、実験によれば約0.2 $\mu\text{m}$ と非常に良好であった。

【0060】上述した焼成ステップを終えた段階の複合積層体4〜7は、たとえば第2のシート層2を除去するなどの処理を施すことなく、そのまま使用に供することができる。

【0061】このようなそのままの使用が可能であることを確認するため、浸透試験（レッドチェック）を行った。まず、複合積層体4〜7を赤に着色された溶剤中に浸漬させ、次いで、これら複合積層体4〜7を溶剤から取り出した後、水で洗浄した。乾燥後、複合積層体4〜7を目視し、赤に着色された溶剤が残留していないかどうかを確認した。その結果、複合積層体4〜7のいずれについても、赤に着色された溶剤の残留は認められなかった。このことから、第2のシート層2の表面はポーラスではなく十分に緻密かつ平滑であり、溶剤がその内部に浸入することが不可能であることがわかる。

【0062】前述の説明では、生の積層体を得るため、生の第1のシート層1となるべきグリーンシートをまず用意し、このグリーンシートに接するように第2のシート層2を形成するとしたが、このような生の積層体を得るため、以下に示すように、種々の手順を採用することができる。

【0063】たとえば、第1のシート層1となるべき第1の粉体を含む第1のグリーンシートを用意するとともに、第2のシート層2となるべき第2の粉体を含む第2のグリーンシートを用意し、第1のグリーンシートと第2のグリーンシートとを所望の順序で積層することによって、生の積層体を得ることができる。

【0064】また、第1のシート層1となるべき第1の粉体を含む第1のグリーンシートを用意した上で、この第1のグリーンシート上で第2のシート層2を成形することによって、第1および第2のシート層1および2を与える複合シートを作製し、この複合シートを用いて、生の積層体を得る方法も採用することができる。

【0065】また、第1のシート層1において比較的大きな厚みを得ようとするときには、複数の第1のグリーンシートを互いに接する状態で積層することを行えばよく、この場合において、第2のシート層2に関しては、第2のグリーンシートを所望の箇所に積層するようにしても、上述の複合シートを所望の箇所に積層するようにしてもよい。

【0066】この発明は、その開口を主面に沿って位置させているキャビティを備える、複合積層体に対して特に有利に適用される。

【0067】キャビティを形成している複合積層体を製造しようとする場合、通常、生の積層体の段階でキャビティが形成される。より具体的には、生の積層体を得るため、前述のように、複数のグリーンシート、あるいは複合シートを含む複数のグリーンシートを積層すること

が行なわれる場合、複数のグリーンシートのうちの外側に位置する特定のものに対して打ち抜き等を適用して貫通孔を設けるようにすれば、所望のキャビティを形成することができる。

【0068】また、上述の貫通孔をグリーンシートに設けるステップは、複数のグリーンシートを積層するステップの前に実施されることが通常であるが、積層されるべき複数のグリーンシートのうちの貫通孔が設けられるべきもののみを予め積層して予備積層体を得るようにされる場合には、この予備積層体に貫通孔を設け、貫通孔が設けられた予備積層体を、最終的な積層ステップに供するようにしてもよい。

【0069】上述したようなキャビティを備える複合積層体に関して反り等の特性を評価するために実施した実験例について、以下に説明する。

【0070】第1の粉体として、粒径 $5\mu\text{m}$ の $\text{SiO}_2$ - $\text{CaO}$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ - $\text{MgO}$ - $\text{B}_2\text{O}_3$ 系ガラス粉末と粒径 $0.5\mu\text{m}$ のアルミナ粉末とを準備し、これらを前者が60重量部、後者が40重量部となるように混合し、この混合物に、分散媒としての水を40重量部、分散剤としてのポリオキシエチレンノニルフェニルエーテルを1重量部、および結合剤としてのウレタン樹脂を5重量部添加し、混合し、かつ分散処理することによって、第1の粉体を含むスラリーを得た。

【0071】このスラリーから気泡を除去した後、スラリーにドクターブレード法を適用することによって、シートを成形し、これを乾燥させることによって、厚み $180\mu\text{m}$ の第1のシート層となるべき複数のグリーンシートを得た。

【0072】他方、第2の粉体として、粒径 $0.5\mu\text{m}$ のアルミナ粉末を準備し、このアルミナ粉末50重量部に対して、テルピン油とエチルセルロースとを容量比で92:8の割合で混合した溶剤を50重量部添加し、混合し、かつ分散処理することによって、第2の粉体を含むペーストを得た。

【0073】次いで、上述のグリーンシートの特定のものの主面上にペーストを塗布することによって、第2のシート層となるべき厚み $10\mu\text{m}$ のペースト層を成形し、それによって、複合シートを得た。

【0074】次いで、キャビティを与えるため、いくつかのグリーンシートおよび複合シートにおいて、 $35\text{mm}$ 角の断面正方形の貫通孔を形成した。

【0075】次いで、上述したように、貫通孔が設けられたものも含めて、所望の数のグリーンシートおよび複合シートを種々の順序で積層した後、 $68\text{mm}$ 角の主面寸法を有しかつ主面中央にキャビティを備える種々の生の積層体を得べく切断工程を実施し、次いで、プレス工程を実施した。

【0076】このプレス工程後の各試料の形態が図5ないし図16に断面図でそれぞれ示されている。図5ない

し図16において、共通して、11は前述した第1の粉体を含む生の第1のシート層、12は第2の粉体を含む生の第2のシート層、および13は主面に沿って開口を位置させているキャビティを示している。

【0077】図5ないし図7は、それぞれ、試料1ないし3を示し、これら試料1ないし3では、1つの第2のシート層12が形成されている。図8ないし図10は、それぞれ、試料4ないし6を示し、これら試料4ないし6では、2つの第2のシート層12が形成されている。図11ないし図13は、それぞれ、試料7ないし9を示し、これら試料7ないし9では、5つの第2のシート層12が形成されている。図14ないし図16は、試料10ないし12を示し、これら試料10ないし12では、第2のシート層を何ら備えていない。

【0078】また、試料1ないし12は、それぞれ、全体として約 $720\mu\text{m}$ の厚みを有するようにされたが、図5、図8、図11および図14にそれぞれ示した試料1、4、7および10では、キャビティ13の深さが $360\mu\text{m}$ に設定され、図6、図9、図12および図15にそれぞれ示した試料2、5、8および11では、キャビティ13の深さが $180\mu\text{m}$ に設定され、図7、図10、図13および図16にそれぞれ示した試料3、6、9および12では、キャビティ13の深さが $540\mu\text{m}$ に設定された。

【0079】次いで、各試料に係る生の積層体を $850^\circ\text{C}$ で2時間焼成した。そして、これら焼成後の各積層体について、反り、収縮率、外形寸法のばらつき、およびキャビティ部分における歪み量をそれぞれ求めた。図17は、各試料に係る積層体の評価方法を説明するためのもので、積層体の、キャビティ13が形成された一方主面を示す平面図である。

【0080】収縮率については、図17に示す6箇所における寸法 $L1$ 、 $L2$ 、 $L3$ 、 $W1$ 、 $W2$ および $W3$ をそれぞれ測定し、これら6つの寸法 $L1$ 、 $L2$ 、 $L3$ 、 $W1$ 、 $W2$ および $W3$ を平均することによって平均寸法を求めながら、「収縮率=(焼成前の平均寸法-焼成後の平均寸法)/(焼成前の平均寸法)」の式に基づいて算出したものである。

【0081】また、外形寸法のばらつきについては、「ばらつき=(焼成後の寸法 $L1$ 、 $L2$ 、 $L3$ 、 $W1$ 、 $W2$ および $W3$ の標準偏差の3倍の値)/(焼成後の平均寸法)」に式に基づいて算出したものである。

【0082】また、キャビティ部分の歪み量については、キャビティ13の平面形状における4つの頂点 $P1$ 、 $P2$ 、 $P3$ および $P4$ の各座標、すなわち、 $(x1, y1)$ 、 $(x2, y2)$ 、 $(x3, y3)$ および $(x4, y4)$ をそれぞれ測定し、頂点 $P1$ を基準点としながら頂点 $P1$ および頂点 $P4$ 間を結ぶ線分を基準線とすることによって、すなわち、 $x1=0$ 、 $y1=0$ および $y4=0$ とすることによって、「歪み量= $\{ (x3$



$-(x4)^2 + (y3 - y2)^2 / 2)^{1/2} / [(x3 + x4 + y2 + y3) / 4]$ 」の式に基づいて算出したものである。

【0083】上述のように、各試料について求められた反り、収縮率、外形寸法のばらつき、およびキャビティ部分における歪み量が、以下の表1に示されている。ま\*

試料	参照図面	反り (mm)	収縮率 (%)	外形寸法ばらつき (%)	キャビティ部分歪み量 (%)	評価
1	図5	0	1.12	0.21	0.16	◎
2	図6	2	1.34	0.32	0.16	○
3	図7	2	1.27	0.28	0.24	○
4	図8	0	0.84	0.13	0.21	◎
5	図9	0	0.76	0.21	0.12	◎
6	図10	0	0.65	0.16	0.11	◎
7	図11	0	0.35	0.088	0.076	◎
8	図12	0	0.34	0.22	0.014	◎
9	図13	0	0.36	0.18	0.045	◎
10	図14	0	8.21	1.10	0.84	×
11	図15	0	7.98	0.91	0.46	×
12	図16	0	8.76	1.13	0.52	×

【0085】表1を参照して、試料1～9がこの発明の範囲内に属するものであるが、特に、試料1および4～9については、反りが0であり、また、収縮率が0.34～1.12%、外形寸法のばらつきが0.088～0.22%、およびキャビティ部分の歪み量が0.014～0.21%というようにそれぞれ極めて小さく、総合的に極めて良好な評価結果が得られている。

【0086】これに対して、この発明の範囲内にある試料1～9のうち、試料2および3については、不所望にも、2mmの反りが生じている。この原因は、これら試料2および3をそれぞれ示す図6および図7と試料1を示す図5とを比較すれば容易に理解できるように、試料2および3では、第2のシート層12が積層方向に関して一方側に片寄った位置にあるため、言い換えると、第2のシート層12の各側に位置される第1のシート層11の各厚みが互いに異なっているためであると考えられる。

【0087】このことから、図5ないし図7ならびに図11ないし図13に示すように、複数の第1のシート層11が第2のシート層12を介して積層されている構造を有する場合には、図5ならびに図11ないし図13において見られるように、第2のシート層12の各側に位置される第1のシート層11の各厚みを互いに実質的に同じにすることが好ましいといえることができる。

【0088】他方、この発明の範囲外にある試料10、11および12については、図14ないし図16に示すように、第2のシート層を備えていないので、それぞれ、収縮率が8.21%、7.98%および8.76%と大きく、外形寸法のばらつきも1.10%、0.91%および1.13%と大きく、また、キャビティ部分の歪み量も0.84%、0.46%および0.52%と大きくなっている。これら収縮率、外形寸法のばらつきおよびキャビティ部分の歪み量の各値は、いずれも、この※50

\*た、表1には、総合的な評価が、「◎」(極めて良好)、「○」(良好)および「×」(不良)の名記号をもって示されている。

【0084】

【表1】

※発明の範囲内にある試料1～9、特に試料1および4～9における対応の値と比較して大きい。このことから、試料10～12は、試料1～9、特に試料1および4～9と比較して、劣ることがわかる。

【0089】

【発明の効果】以上のように、この発明によれば、第1のシート層とこれに接する第2のシート層とを備える複合積層体を得られ、第1のシート層に含まれる第1の粉体の少なくとも一部は、焼結状態にあり、他方、第2のシート層に含まれる第2の粉体は、未焼結状態にあるが、第1のシート層の材料の一部が第2のシート層に拡散あるいは流動することによって、互いに固着されているので、第2のシート層を後で除去したり、ここに樹脂を充填したりするといった処理を施すことなく、そのままの状態で使用に供することができる。

【0090】また、上述のように、第2のシート層を除去したり、ここに樹脂を充填したりする処理を行なう必要がないので、表面に形成されるべき導電膜の焼成を第1のシート層の焼成と同時に行なうことが可能となる。

【0091】また、複合積層体において表面に位置するシート層に含まれる粉体の粒径を小さくすることにより、表面粗さの小さい複合積層体を得ることができる。

【0092】また、第2のシート層に含まれる第2の粉体としては、絶縁性、誘電性、圧電性、磁性等の任意の性質を有するものを比較的自由に用いることができるので、得られた複合積層体に対して特定の電磁氣的機能を容易に付与することができる。また、これらの性質を任意に組み合わせることにより、たとえば、L-C-R複合基板等を容易に作製することができる。また、第2の粉体として、高い耐摩耗性、高い靱性を有するものを用いるようにすれば、複合積層体を機械的強度の高いものとすることができる。また、光反射性、赤外線反射性等の性質を有する粉体を第2の粉体として用いるようにす

れば、複合積層体に対して、特定の光学的機能を付与することができる。

【0093】また、第1のシート層のための第1の粉体がアノーサイト系結晶化ガラス粉末を含むようにすると、焼成ステップにおいて、このようなアノーサイト系結晶化ガラスが第2のシート層の全域に拡散あるいは流動することが容易であり、そのため、第2の粉体のすべてをこれによって良好に固着させることができる。

【0094】同様に、第2のシート層が第1のシート層より薄くされると、第1のシート層の材料の一部が、第2のシート層の全域に拡散あるいは流動することがより容易になり、したがって、この場合にも、第2の粉体のすべてが第1のシート層の材料によって互いに良好に固着されることがより容易になる。

【0095】また、特にこの発明に係る複合積層体の製造方法によれば、焼成ステップにおいて、第2の粉体を焼結させないので、この第2の粉体を含む第2のシート層が第1のシート層の収縮を抑制するように作用し、焼成による複合積層体全体としての収縮を抑制することができ、結果として、得られた複合積層体の寸法のばらつきを低減することができる。

【0096】このような寸法のばらつきは、特にキャビティを有する複合積層体において生じやすいので、この発明は、キャビティを有する複合積層体およびその製造方法に対して、より有利に適用することができる。このことから、また、この発明がキャビティを有する複合積層体に関して適用されると、キャビティの部分における歪みも低減することができる。

【0097】また、この発明に係る複合積層体の製造方法において用意される生の積層体が、第2のシート層を介して積層される複数の第1のシート層を備えるときには、第2のシート層の各側に位置される第1のシート層の各厚みを、互いに実質的に同じとなるように設定すれば、焼成ステップにおいて、第1のシート層の各々の収縮量を互いに実質的に等しくすることができ、そのため、焼結後の複合積層体において反りが生じることを有利に抑制することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】この発明の第1の実施形態による複合積層体4を図解的に示す断面図である。

【図2】この発明の第2の実施形態による複合積層体5を図解的に示す断面図である。

【図3】この発明の第3の実施形態による複合積層体6を図解的に示す断面図である。

【図4】この発明の第4の実施形態による複合積層体7を図解的に示す断面図である。

【図5】この発明の他の実施形態によるキャビティを備

える複合積層体に関して反り等の特性を評価するために実施した実験例において作製された試料1に係る生の積層体を図解的に示す断面図である。

【図6】図5に示した試料1の場合と同様の実験例において作製された試料2に係る生の積層体を図解的に示す断面図である。

【図7】図5に示した試料1の場合と同様の実験例において作製された試料3に係る生の積層体を図解的に示す断面図である。

【図8】図5に示した試料1の場合と同様の実験例において作製された試料4に係る生の積層体を図解的に示す断面図である。

【図9】図5に示した試料1の場合と同様の実験例において作製された試料5に係る生の積層体を図解的に示す断面図である。

【図10】図5に示した試料1の場合と同様の実験例において作製された試料6に係る生の積層体を図解的に示す断面図である。

【図11】図5に示した試料1の場合と同様の実験例において作製された試料7に係る生の積層体を図解的に示す断面図である。

【図12】図5に示した試料1の場合と同様の実験例において作製された試料8に係る生の積層体を図解的に示す断面図である。

【図13】図5に示した試料1の場合と同様の実験例において作製された試料9に係る生の積層体を図解的に示す断面図である。

【図14】図5に示した試料1の場合と同様の実験例において作製された試料10に係る生の積層体を図解的に示す断面図である。

【図15】図5に示した試料1の場合と同様の実験例において作製された試料11に係る生の積層体を図解的に示す断面図である。

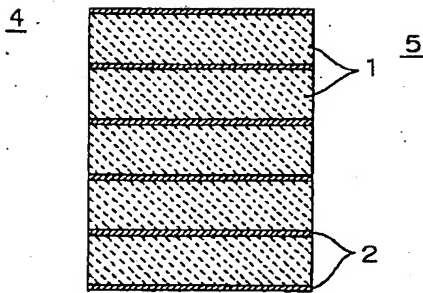
【図16】図5に示した試料1の場合と同様の実験例において作製された試料12に係る生の積層体を図解的に示す断面図である。

【図17】図5ないし図16にそれぞれ示した試料1ないし12に係る積層体の評価方法を説明するためのもので、積層体の、キャビティが形成された一方主面を示す平面図である。

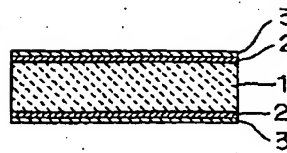
【符号の説明】

- 1, 11 第1のシート層
- 2, 12 第2のシート層
- 3 導電膜
- 4~7 複合積層体
- 13 キャビティ

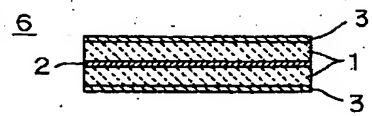
【図1】



【図2】

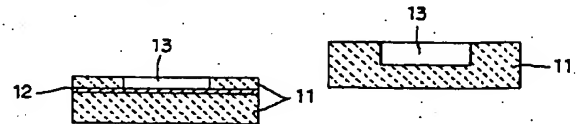


【図3】



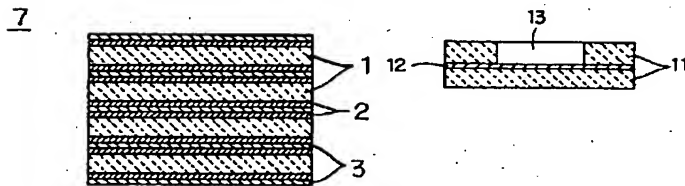
【図14】

【図6】

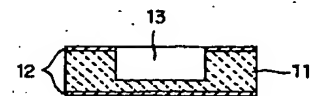


【図4】

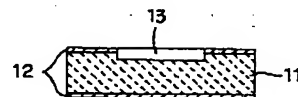
【図5】



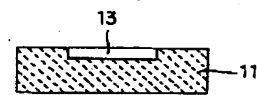
【図10】



【図9】

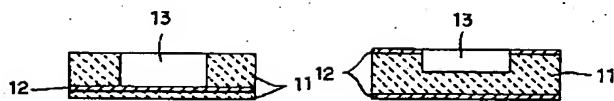


【図15】

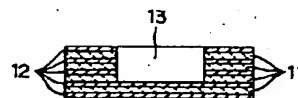


【図7】

【図8】

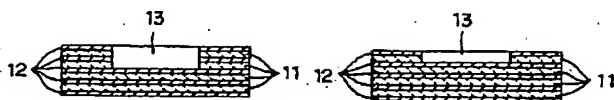


【図13】

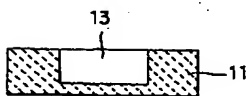


【図11】

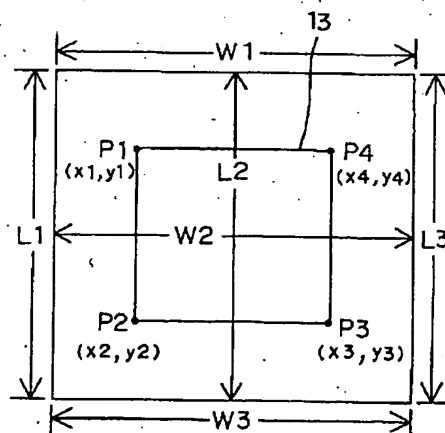
【図12】



【図16】



【図17】



**THIS PAGE BLANK (USPTO)**